

# METALLIC PIGMENT COMPOSITION, COATING COMPOSITION, INK COMPOSITION, RESIN COMPOSITION, RUBBER COMPOSITION, AND METHOD FOR PRODUCING THE METALLIC PIGMENT COMPOSITION

Patent Number: JP2003049091

Publication date: 2003-02-21

Inventor(s): IKETANI AKIHIKO; HOSHITANI TAKASHI; SUGITA SHUICHI; SHIRAI YASUSHI

Applicant(s): TOYO ALUMINIUM KK;; NISSHIN STEEL CO LTD

Requested Patent: JP2003049091

Application Number: JP20010236418 20010803

Priority Number(s):

IPC Classification: C09C1/00; C08K9/02; C08L101/00; C09C1/40; C09C3/00; C09D7/12; C09D11/00; C09D201/00

EC Classification:

Equivalents:

## Abstract

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a metallic pigment composition having various colors and simultaneously exhibiting excellent sheen.

**SOLUTION:** The metallic pigment composition is obtained by covering the surfaces of metal flakes with a film of a dissimilar metal, wherein the flakes have an average particle diameter of 5-100 &mu m and an average thickness of 0.1-5.0 &mu m, and the film has an average thickness of 0.0005-0.02 &mu m. The metallic pigment composition is preferably formed by spattering the flakes covered with the film in a state that the flakes form a fluidized bed, so that the surfaces of 100 pts.wt. of the metal flakes are covered with 1-50 pts.wt. of the film of the dissimilar metal.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-49091

(P2003-49091A)

(43)公開日 平成15年2月21日(2003.2.21)

(51)Int.Cl'	識別記号	F I	テ-マ-ト(参考)
C 0 9 C	1/00	C 0 9 C	4 J 0 0 2
C 0 8 K	9/02	C 0 8 K	4 J 0 3 7
C 0 8 L	101/00	C 0 8 L	4 J 0 3 8
C 0 9 C	1/40	C 0 9 C	4 J 0 3 9
	3/00	3/00	

審査請求 未請求 請求項の数10 OL (全 9 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001-236418(P2001-236418)

(71)出願人 399054321

東洋アルミニウム株式会社

大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目 6 番 8  
号

(22)出願日 平成13年8月3日(2001.8.3)

(71)出願人 000004581

日新製鋼株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目4番1号

(72)発明者 池谷 昭彦

大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8号 東洋アルミニウム株式会社内

(74) 代理人 100064746

弁理士 深見 久郎 (外4名)

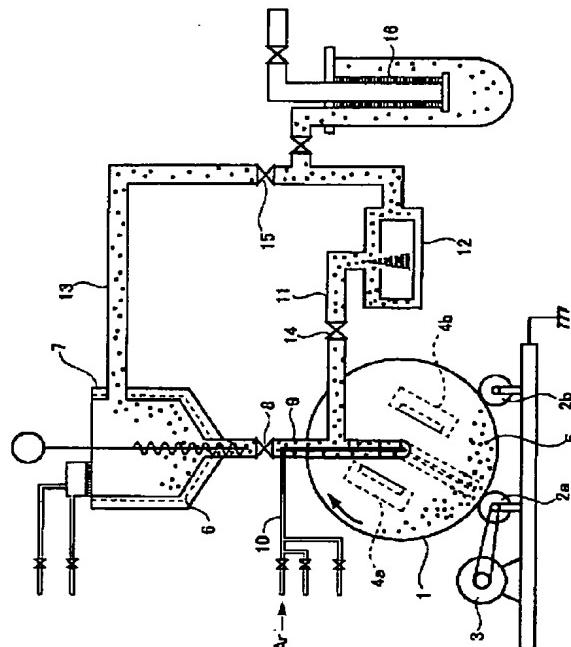
最終頁に統ぐ

(54) 【発明の名称】 メタリック顔料組成物、塗料組成物、インキ組成物、樹脂組成物、ゴム組成物およびメタリック顔料組成物の製造方法

(57)【要約】

【課題】 多様な色彩をもち、同時に優れた光輝性を示す、メタリック顔料組成物を提供する。

【解決手段】 平均粒径が5～100μmであり、平均厚みが0.1～5.0μmである金属フレークの表面を、平均厚みが0.0005～0.02μmである異種金属の薄膜で被覆したメタリック顔料組成物。ここで、当該メタリック顔料組成物としては、金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うことにより、100重量部の金属フレークの表面に、1～50重量部の異種金属を被覆したものが好ましい。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 平均粒径が5～100μmであり、平均厚みが0.1～5.0μmである金属フレークの表面を、平均厚みが0.0005～0.02μmである異種金属の薄膜で被覆した、メタリック顔料組成物。

【請求項2】 金属フレーク100重量部に対し、異種金属を1～50重量部含むことを特徴とする、請求項1に記載のメタリック顔料組成物。

【請求項3】 金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うことにより、金属フレークの表面に異種金属を被覆したことを特徴とする、請求項1または請求項2に記載のメタリック顔料組成物。

【請求項4】 金属フレークを被覆する異種金属が、銀、銅、鉄、ニッケル、チタンからなる群から選ばれる1種または2種以上の金属、あるいは、当該群から選ばれる1種または2種以上の金属を主成分とする合金、である事を特徴とする、請求項1～3のいずれかに記載のメタリック顔料組成物。

【請求項5】 金属フレークがアルミニウムフレークであることを特徴とする、請求項1～4のいずれかに記載のメタリック顔料組成物。

【請求項6】 請求項1～5のいずれかに記載のメタリック顔料組成物と、バインダと、溶剤と、を含有する、塗料組成物。

【請求項7】 請求項1～5のいずれかに記載のメタリック顔料組成物と、バインダと、溶剤と、を含有する、インキ組成物。

【請求項8】 請求項1～5のいずれかに記載のメタリック顔料組成物と、樹脂と、を含有する、樹脂組成物。

【請求項9】 請求項1～5のいずれかに記載のメタリック顔料組成物と、ゴムと、を含有する、ゴム組成物。

【請求項10】 金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うことにより、100重量部の金属フレークの表面に、1～50重量部の異種金属を被覆することからなる、請求項1～5のいずれかに記載のメタリック顔料組成物の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、メタリック顔料組成物に関する。さらに詳しくは、メタリック顔料組成物、ならびに当該メタリック顔料組成物を用いた、塗料組成物、インキ組成物、樹脂組成物、およびゴム組成物、ならびに当該メタリック顔料組成物の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】メタリック塗料を用いて形成される塗膜は、塗膜に含まれている鱗片状のメタリック顔料組成物で外部からの入射光を反射し、キラキラと輝く意匠を示す。光の反射は、塗膜の各色調と相俟って、意匠性に優れた独特の外観を呈する。

【0003】このような特徴を活かし、自動車用塗装仕上げ、プラスチックの塗装仕上げ、印刷インキ、および、樹脂成形体、などのメタリック性意匠には、従来、主としてアルミニウムフレークを含有するメタリック顔料組成物が使用されている。

【0004】また、近年、消費者の嗜好の多様化に伴って、赤色、緑色、紫色、などに着色した、多様な色彩をもつ高光輝性メタリック顔料組成物が望まれている。しかし、アルミニウムフレークは、本来、無彩色であり、銀白色光沢を呈する顔料であるため、そのままでは、前記の消費者の要望を満足させることができない。

【0005】そのため、アルミニウムフレークに代えて雲母などの無機フレークを含有する顔料も使用されている。この場合、パール調などの特徴ある色調を得ることができる。しかし、無機フレークを使用した顔料は、隠べい力に乏しく主顔料としての使用には適当でなく、また、十分な金属光沢感を得ることができないため、前記の消費者の要望を十分満足させることはできない。

【0006】また、着色されたメタリック仕上げを実現するため、着色顔料と、アルミニウムフレーク、または、パール顔料と、を混合して使用することも行なわれている。しかし、この方法で得られる色調はあくまで着色顔料とメタリック顔料組成物の中間の意匠を呈するものであって、メタリック感の低下は免れない。

【0007】これらの問題点を解決し、消費者の多様な色彩への要望を満足させるため、数多くの試みがなされてきた。たとえば、特開平9-124973号公報には、個々のアルミニウムフレークに着色顔料を付着せしめる着色メタリック顔料組成物およびその製造方法が開示されている。また、特許第2622999号公報、特許第3026582号公報、特開平3-173318号公報、特開平7-220625号公報、特開平10-35672号公報、特開平9-67527号公報、などには、アルミニウムなどの金属フレーク顔料表面にTiなどの金属酸化物やSi酸化物を被覆した着色メタリック顔料組成物やその製造方法が開示されている。それぞれにその色調には特長があるが、前記の消費者の要望を十分満足させるには、なお改善の余地がある。

【0008】さらに、金属などの粉末の表面に金属粒子を被膜として形成させたものも開示されている。特開平4-354882号公報には、アルミニウム粉末表面に無電解めっきにより繊細な金属粒子を被膜として形成させたもの、および、その製造方法が開示されている。また、特開平2-153068号公報には金属、セラミック、または、プラスチックの粉末表面にスパッタリングにより金属被膜を形成させる方法、および、その装置が開示されている。しかしこれらの方法で作られた金属被覆粉末は、導電性フィラー、触媒用、装飾用、粉末冶金用、粒子分散強化複合材、などを目的として開発されたものであって、用いられた粉末の形状、形成された被膜

の厚さやその均一性など、着色メタリックの顔料としてはおよそふさわしくないものである。

【0009】特開2000-17194公報にも、同じくスパッタリングによって異種金属を被覆された扁平状アルミニウム粉が開示されている。しかし、この方法はアルミニウム粉末表面にスパッタリングにより導電性に優れた金属を被覆し、その後そのアルミニウム粉末を塑性(延伸)加工することで被覆金属皮膜とともに扁平状にすることで良好な導電性を示す粉末を得るものである。つまり、EMIシールド性や帯電防止性を備えた塗料顔料や樹脂成形体のフィラーとして使用されるものであり、着色メタリック顔料組成物としては、そのままである。

#### 【0010】

【発明が解決しようとする課題】上記の現状に基づき、本発明の課題は、多様な色彩をもち、同時に優れた光輝性を示す、メタリック顔料組成物を提供することである。

【0011】また、本発明の他の課題は、当該メタリック顔料組成物を用いた、多様な色彩をもち、同時に優れた光輝性を示す、塗料組成物、インキ組成物、樹脂組成物、ゴム組成物、などの各種製品を提供することである。

【0012】さらに、本発明のもう一つの他の課題は、当該メタリック顔料組成物を得るための、得られる製品の品質に優れた、効率的な製造方法を提供することである。

#### 【0013】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記の課題を達成するには、金属フレークの表面に異種金属の薄膜を被覆させ、光の干渉作用を利用すればよいとの着想を得、鋭意検討を重ねた。その結果、特定の形状の金属フレークの表面に、特定の平均厚みを持つ異種金属の薄膜を、スパッタリング法により被覆させることにより、上記の課題を達成できることを見出し、本発明を完成させた。

【0014】すなわち、本発明のメタリック顔料組成物は、平均粒径が5～100μmであり、平均厚みが0.1～5.0μmである金属フレークの表面を、平均厚みが0.0005～0.02μmである異種金属の薄膜で被覆することを特徴とする。

【0015】ここで、本発明のメタリック顔料組成物は、前記の金属フレーク100重量部に対し、異種金属を1～50重量部、含むことが好ましい。

【0016】また、本発明のメタリック顔料組成物は、金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うことにより、金属フレークの表面に異種金属を被覆したものが、好ましい。

【0017】さらに、金属フレークを被覆する前記の異種金属は、銀、銅、鉄、ニッケル、チタンからなる群か

ら選ばれる1種または2種以上の金属、あるいは、当該群から選ばれる1種または2種以上の金属を主成分とする合金、であることが好ましい。また、前記の金属フレークは、アルミニウムフレークが好ましい。

【0018】そして、本発明は、前記のメタリック顔料組成物と、バインダと、溶剤と、を含有する、塗料組成物を含む。さらに、本発明は、前記のメタリック顔料組成物と、バインダと、溶剤と、を含有する、インキ組成物を含む。

【0019】また、本発明は、前記のメタリック顔料組成物と、樹脂と、を含有する樹脂組成物を含む。さらに、本発明は、前記のメタリック顔料組成物と、ゴムと、を含有するゴム組成物を含む。

【0020】加えて、本発明は、金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うことにより、100重量部の金属フレークの表面に、1～50重量部の異種金属を被覆することからなる、前記のメタリック顔料組成物の製造方法を含む。

#### 【0021】

【発明の実施の形態】以下、実施の形態を示して本発明をより詳細に説明する。

【0022】まず、本発明のメタリック顔料組成物について説明する。本発明のメタリック顔料組成物は、平均粒径が5～100μmであり、平均厚みが0.1～5.0μmである金属フレークの表面を、平均厚みが0.005～0.02μmである異種金属からなる薄膜で被覆することを特徴とする。

【0023】本発明のメタリック顔料組成物の基材となる金属フレークは、特に限定されず、一般的にメタリック顔料組成物に用いられる種類の金属フレークを使用可能である。具体的には、アルミニウム、亜鉛、スズ、銅、ブロンズ、ニッケル、チタン、ステンレス、などの金属フレークが好ましい。

【0024】着色性を考慮すれば、アルミニウム、亜鉛、スズ、ステンレス、などの金属自体が彩度を持たない材料が特に好ましい。なかでも、アルミニウムは加工性に優れていることからメタリック顔料組成物として広く使用されており、その形状も幅広く選択できることから、本発明の基材として最も好ましい。

【0025】本発明のメタリック顔料組成物の基材となる金属フレークの平均粒径は5～100μmの範囲にある必要があり、特に10～40μmの範囲にあることが好ましい。平均粒径が5μmより小さいと、スパッタリング工程での取り扱いが難しく、粒子は凝集しやすくなり、平均粒径が100μmを超えると、塗料やインキとして使用したときに塗膜表面が荒れて、好ましい意匠を実現できない。

【0026】本発明のメタリック顔料組成物の基材となる金属フレークの平均厚みは、0.1～5.0μmの範囲にある必要があり、特に0.3～2.0μmの範囲に

あることが好ましい。平均厚みが $0.1\mu\text{m}$ より小さい場合は、スパッタリング工程での取り扱いが難しく、粒子は凝集しやすくなり、平均厚みが $5.0\mu\text{m}$ を超えると、塗料やインキとして使用したときに塗膜表面が荒れて、好ましい意匠を実現できない。

【0027】ここで、金属フレーク顔料の平均粒径は、レーザー回折法、マイクロメッシュ法、コールターカウンター法、などの公知の粒度分布測定法により測定された粒度分布より、体積平均を算出して求められる。平均厚みについては、金属フレーク顔料の懸濁力と密度より算出される。

【0028】本発明のメタリック顔料組成物の基材となる金属フレークに被覆される異種金属は、特に限定されず、基材となる金属フレークに均一な薄膜として被覆することができ、光の干渉作用により独特の意匠を示し得るものであれば、その種類を問わない。

【0029】具体的には、金、銀、銅、ニッケル、コバルト、チタン、アルミニウム、の他に、真鍮などの銅合金、ステンレス鋼などの鉄合金、ハステロイなどのニッケル合金、などが、スパッタリング法により被覆可能なため、好ましい。これらの金属のなかでも、銀、銅、鉄、ニッケル、チタンを主成分とする合金は、アルミニウムフレークに被覆した際に、優れた意匠性を示す点で、さらに好ましい。

【0030】金属フレーク表面を被覆する異種金属の薄膜の平均厚みは、 $0.0005\sim0.02\mu\text{m}$ の範囲にある必要があり、特に $0.001\sim0.01\mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。異種金属の薄膜の平均厚みがこの範囲にあるときは、メタリック顔料組成物は被覆した異種金属の色をそのままは示さない。すなわち、入射した光が金属フレーク表面および異種金属の薄膜表面で反射され、これらの反射光同士の干渉作用が発現し、金属感のある独特の色彩を示す。

【0031】異種金属の薄膜の平均厚みが $0.0005\mu\text{m}$ 未満の場合は、本発明の特色である独特の質感や見る角度により色相が変化する意匠を実現できない。逆に、異種金属の薄膜の平均厚みが $0.02\mu\text{m}$ を超える場合は、被覆された異種金属の薄膜表面が荒れて、やはり目的の意匠を実現できないばかりか、被覆された異種金属の色になってしまい異種金属を被覆する意味がなくなってしまう。さらに、極端な場合は被覆された異種金属の薄膜の脱落を生じる場合もある。

【0032】金属フレーク表面を被覆する異種金属の量は、基材である金属フレーク100重量部に対して、1～50重量部の範囲にあることが好ましく、特に2～25重量部の範囲にあればさらに好ましい。金属フレーク表面を被覆する異種金属の量がこの範囲にあるときは、スパッタリング法により金属フレーク表面に異種金属の薄膜を形成させた場合、異種金属の薄膜の平均厚みが

$0.0005\sim0.02\mu\text{m}$ の範囲に収まることとなるからである。

【0033】次に、本発明のメタリック顔料組成物の製造方法について説明する。金属フレークの表面に異種金属の薄膜を形成させる方法は、PVD法が好ましく、公知のスパッタリング法、真空蒸着法、イオンプレーティング法、などが使用可能である。スパッタリング法としては、二極スパッタ方式、マグнетロンスパッタ方式、高周波スパッタ方式、などが使用可能であり、通常スパッタリング室の雰囲気は、減圧下でプラズマ源となるアルゴンガスを導入して実施する。そして、これらのスパッタリング法の中でも、金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うことにより、金属フレークの表面に異種金属の薄膜を被覆する方法が、最も適している。

【0034】当該スパッタリング法では、プラズマ状態まで励起された異種金属原子が、金属フレークの表面に高速で衝突する現象を繰り返すので、異種金属の薄膜形成時の核発生密度が極めて密になり、少量の異種金属で金属フレーク表面を均一に被覆することができるので、性能上優位である。

【0035】また、当該スパッタリング法により、異種金属を強固に金属フレーク上に被覆することが出来、さらに、異種金属の薄膜は、金属平滑面はもちろん、端面にも均一な被覆層として設けられる。その上、当該スパッタリング法を用いることにより、無電解めっき法、および、真空蒸着法では困難な種々の合金も簡単にコーティングできる。

【0036】金属フレークが流動層を形成した状態でスパッタリングを行うには、たとえば、粉末を収容した回転容器を回転させ、回転容器の内部に流動層を形成し、この流動層にスパッタリングする装置（特開平2-153068号公報）、繰り返される粉末の落下流にスパッタリングする装置（特開昭62-250172号公報）、などが使用可能である。

【0037】具体的には、図1に示すような、日新製鋼株式会社が開発した粉末スパッタリング装置を好適に使用可能である。この粉末スパッタリング装置においては、回転ドラム1を2本のロール2a、2bで支持し、一方のロール2aをモーター3で回転させる。回転ドラム1の内部には、2個のスパッタリング源4a、4bが配置されており、投入した金属フレーク5がスパッタリングされる。

【0038】回転ドラム1の上方には外周に加熱コイル6を備えた減圧処理室7が配置されており、減圧処理室7の底部はバルブ8を備えた供給管9で回転ドラム1に接続されている。供給管9のバルブ8より下側の部分は、Arガス導入管10が内部に挿入された二重管になっている。供給管9は、回転ドラム1の側面から内部に挿入され、先端が回転ドラム1の底部に伸長している。

供給管9のバルブ8より下側に分岐管11が設けられており、分岐管11の先端が流体ジェットミル12に接続されている。さらに、流体ジェットミル12の出側は、循環管13を介して減圧処理室7の上部に接続されている。分岐管11、循環管13にはバルブ14、15がそれぞれ装着されており、循環管13には固気分離装置16が接続されている。

【0039】回転ドラム1内でスパッタリングにより異種金属で被覆された金属フレーク5は、分岐管11、循環管13から減圧処理室7に送られ、所定厚み皮膜が形成されるまでスパッタリング処理に繰り返し供される。所定の厚みを持つ皮膜が形成された金属フレーク5は、固気分離装置16で回収される。

【0040】本発明のメタリック顔料組成物は、塗料中の分散性向上、樹脂との密着性改善、および、変色防止や耐食性向上のために、ステアリン酸、オレイン酸、などの各種脂肪酸や、ベンゾトリアゾール、トリアジンチオール、などの各種キレート剤、または、各種カップリング剤で表面を処理してもよい。

【0041】前記のカップリング剤の具体例としては、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -アミノエチル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリルオキシプロピルトリメトキシシラン、チタン系カップリング剤、ジルコニア系カップリング剤、アルミ系カップリング剤、などが挙げられる。

【0042】次に、本発明の塗料組成物、および、インキ組成物について説明する。本発明の塗料組成物、および、インキ組成物は、本発明のメタリック顔料組成物と、バインダと、溶剤と、を含有する。

【0043】前記のバインダとしては、特に限定されず、一般にメタリック顔料組成物を含む塗料組成物、あるいは、インキ組成物に用いられるバインダを、使用可能である。具体的には、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、フッ素樹脂、自然乾燥により硬化するラッカー、2液型ポリウレタン樹脂、シリコーン樹脂、などが挙げられ、透明な樹脂であれば、さらに好ましい。これらのバインダは、アミノ樹脂、メチロール化メラミン樹脂、アルキルエーテル化メラミン樹脂、尿素樹脂、ポリイソシアネート化合物、などの架橋剤と併せて使用することもできる。

【0044】前記の溶剤としては、特に限定されず、一般にメタリック顔料組成物を含む塗料組成物、あるいは、インキ組成物に用いられる溶剤を使用可能である。具体的には、ミネラルスピリット、ヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、オクタン、などの脂肪族炭化水素、ベンゼン、トルエン、キシレン、などの芳香族炭化水素、クロルベンゼン、トリクロルベンゼン、バークロルエチレン、トリクロルエチレン、などのハログン化炭

化水素、メタノール、エタノール、n-ブロビルアルコール、n-ブタノール、などのアルコール類、n-ブロパノン、2-ブタノン、などのケトン類、酢酸エチル、酢酸プロピル、などのエステル類、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、エチルプロピルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、などのグリコール類およびそのエーテルが挙げられる。

【0045】本発明の塗料組成物、および、インキ組成物に含有される、本発明のメタリック顔料組成物は、バインダ(固体分)100重量部当たり、0.1~40重量部の割合で配合されることが好ましく、1~25重量部の割合であればさらに好ましく、5~20重量部の割合が最も好ましい。

【0046】メタリック顔料組成物の配合量が0.1重量部未満では、塗膜の隠ぺい力および金属光沢性が乏しい傾向があり、メタリック顔料組成物の配合量が40重量部を超えると、塗膜の物性や表面平滑性に悪影響を与える可能性がある。

【0047】また、本発明の塗料組成物、および、インキ組成物は、本発明のメタリック顔料組成物以外に着色顔料を含まなくても多様な色彩をもち、同時に優れた光輝性を示す塗膜を得ることができるが、他の着色顔料と共に含有しても良い。その場合は、本発明のメタリック顔料組成物単独の場合に比べてさらに色調の選択幅が拡大する。

【0048】また、本発明の塗料組成物、および、インキ組成物において、本発明のメタリック顔料組成物以外に使用可能な着色顔料は、特に限定されず、一般にメタリック顔料組成物を含む塗料組成物、あるいは、インキ組成物に用いられる着色顔料を使用可能である。具体的には、フタロシアニン、ハロゲン化フタロシアニン、キナクリドン、ジケトビロロビロール、イソインドリノン、アゾメチレン金属錯体、インダンスロン、ペリレン、ペリノン、アントラキノン、ジオキサジン、ベンゾイミダゾロン、縮合アゾ、トリフェニルメタン、キノフタロン、アントラビリミジン、酸化チタン、酸化鉄、亜鉛華、コバルトブルー、群青、黄鉛、カーボンブラック、バールマイカ、などが挙げられる。

【0049】また、本発明の塗料組成物、および、インキ組成物には、必要に応じ、塗膜の多様な色彩、および、優れた光輝性を損なわない程度において、界面活性剤、硬化剤、紫外線吸収剤、静電気除去剤、増粘剤、カップリング剤、可塑剤、分散剤、酸化防止剤、艶出し剤、合成保存剤、潤滑剤、などの各種添加剤を加えることができる。

【0050】次に、本発明の樹脂組成物、および、ゴム組成物について説明する。本発明の金属顔料組成物は、塗料組成物やインキ組成物中で顔料として使用されるのみならず、たとえば、樹脂組成物、ゴム組成物、その他

の高分子材料、などに練りこんで使用でき、金属の持つ光輝性と多様な色彩を持つ特徴的な仕上がり感を与えることができる。

【0051】本発明の金属顔料組成物を練りこむ樹脂組成物に用いる樹脂としては、アクリル、ポリエステル、ポリウレタン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブタジエン、ポリカーボネート、ABS、ポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、などを使用できる。

【0052】本発明の金属顔料組成物を練りこむゴム組成物に用いるゴムとしては、ブタジエンゴム、スチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンコポリマー、ニトリルブタジエンゴム、ウレタンゴム、シリコンゴム、フッ素ゴム、アクリルゴム、天然ゴム、熱可塑性エラストマー、などを使用できる。

【0053】本発明の樹脂組成物、および、ゴム組成物には、必要に応じ、溶剤、着色顔料、紫外線吸収剤、増粘剤、静電気除去剤、分散剤、酸化防止剤、艶出し剤、界面活性剤、合成保存剤、潤滑剤、可塑剤、硬化剤、フィラー、などを添加することもできる。

【0054】本発明の樹脂組成物、および、ゴム組成物の成形の方法としては、従来公知の方法が使用でき、押出し成形法、射出成形法、インフレーション法、その他の溶融成形法、などを使用することができる。

【0055】本発明の樹脂組成物、および、ゴム組成物に含有される、本発明のメタリック顔料組成物は、樹脂あるいはゴム（固形分）100重量部当たり、0.1～30重量部の割合で配合されることが好ましく、0.1～20重量部の割合であればさらに好ましく、0.1～5重量部の割合が最も好ましい。

【0056】メタリック顔料組成物の配合量が0.1重量部未満では、金属光沢性が乏しい傾向があり、メタリック顔料組成物の配合量が30重量部を超えると、奥行きのある高級なメタリック感が得にくくなる傾向がある。

【0057】次に、本発明の塗料組成物およびインキ組成物の塗膜について説明する。本発明の塗料組成物およびインキ組成物の塗膜が形成される基材は特に限定されるものではなく、たとえば、プラスチック基材や金属基材が用いられる。金属基材の具体例としては、鉄、銅、アルミニウム、錫、亜鉛など、これらの合金および铸造物が挙げられる。

【0058】このような基材の具体例としては、自動車、自動二輪車などの車体および部品が挙げられる。特\*

アトマイズアルミニウム粉末（平均粒径7μm）	1.5kg
オレイン酸	100g
ミネラルスピリット	2L

ミネラルスピリット16Lを用いてボールミルよりアルミニウムフレークを洗い出して、200メッシュの振動式ふるいで湿式分級をした後、ろ過により固液分離し

\*に铸造、鍛造のアルミニウム系合金製ホイールあるいは鉄製のホイールは表面が複雑な形状を有し、かつ外観が重視される部品であるので、本発明の塗料組成物およびインキ組成物はこのような基材に対し特に有用である。これらの金属基材は、あらかじめ磷酸塩、クロム酸塩などで化成処理されることが好ましい。

【0059】本発明の塗料組成物およびインキ組成物の塗装方法あるいは印刷方法は、特に限定されるものではなく、使用する塗料組成物またはインキ組成物の形態および基材の表面形状などを考慮して種々の塗装方法あるいは印刷方法を用いることができる。たとえば、本発明の塗料組成物の塗装方法としては、スプレー法、ロールコーティング法、刷毛塗り法、ドクターブレード法、などがあり、本発明のインキ組成物の印刷方法としては、グラビア印刷、スクリーン印刷、などがある。

【0060】本発明の実施形態により必要なときは、下地塗膜層、メタリック塗膜層、および、上塗り塗膜層を順次塗装してもよい。この場合、各塗膜層を塗装し硬化あるいは乾燥後に次の塗膜層を塗装してもよいし、いわゆるウェットオンウェット塗装により各塗膜層を塗装した後、硬化あるいは乾燥させずに次の塗膜層を塗装してもよい。しかしながら、良好な鏡面様の光輝性をもつ塗膜を得るためにには、下地塗膜層を塗装し硬化あるいは乾燥後、メタリック塗膜層を塗装することが好ましい。各塗膜層の塗料組成物の硬化方法は、たとえば熱硬化であってもよいし、常温硬化であってもよい。また、各塗膜層の塗料組成物の乾燥方法は、たとえば熱風を用いてもよいし、常温における自然乾燥であってもよい。

【0061】この場合、下地塗膜層の厚みは、特に限定されるものではないが、一般的な実施形態においては、10～200μmの範囲であることが好ましい。また、メタリック塗膜層の厚みは、特に限定されるものではないが、一般的な実施形態においては、1～100μmの範囲であることが好ましい。上塗り塗膜層の厚みは、特に限定されるものではないが、一般的な実施形態においては、5～300μmの範囲であることが好ましい。

【0062】  
【実施例】以下、実施例を挙げて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。  
【0063】<実施例1>

《アルミニウムフレーク調整工程》容積30Lのボールミル内にスチールボール50kgと共に以下の材料をチャージし、回転数60rpm、粉碎時間3.5時間の条件下湿式粉碎を行った。

た。その後、得られたアルミニウムフレークと同量のアセトンにてろ過ケーキを洗浄し、800°Cのオープンにて乾燥して、アルミニウムフレークを製造した。得られ

たアルミニウムフレークの平均粒径は $18\text{ }\mu\text{m}$ 、厚みは $0.54\text{ }\mu\text{m}$ 、比表面積は $2.73\text{ m}^2/\text{g}$ であった。

【0064】『スパッタリング工程』特開平2-153068号公報に開示されている粉末スパッタリング装置を用いて、前述の方法で製造したアルミニウムフレークの表面に銀を被覆した。すなわち内径 $200\text{ mm}$ 、軸方向長さ $200\text{ mm}$ の回転ドラム内に、前記のアルミニウムフレーク $100\text{ g}$ を充填し、 $3.0 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ に減圧した後、Arガスを $15\text{ cm}^3/\text{分}$ の流量で導入しながら、ドラム内の雰囲気を一定に保った。その後、投入電力 $1.5\text{ kW}$ 、周波数 $13.56\text{ MHz}$ の条件で銀ターゲットをスパッタリング源としてマグネットロン型スパッタリングを行い、アルミニウムフレークの表面に銀を被覆した。

【0065】スパッタリングを45分間継続した後、ドラム内のメタリック顔料組成物を回収した。回収されたメタリック顔料組成物にはアルミニウムフレーク $100\text{ 重量部}$ に対し、 $5\text{ 重量部}$ の銀が被覆されていた。

【0066】『実施例2』実施例1と同様のプロセスで製造したアルミニウムフレーク上に、実施例1と同様のプロセスで銀を $10\text{ 重量部}$ 被覆して、メタリック顔料組成物を得た。

【0067】『実施例3』実施例1と同様のプロセスで製造したアルミニウムフレーク上に、実施例1と同様のプロセスで銅を $10\text{ 重量部}$ 被覆して、メタリック顔料組成物を得た。

【0068】『実施例4』実施例1と同様のプロセスで、出発原料として $10\text{ }\mu\text{m}$ の水アトマイズ銅粉末を使用し、粉碎時間を5時間として銅フレークを得た。得られた銅フレークは平均粒径は $28\text{ }\mu\text{m}$ 、厚みは $0.67\text{ }\mu\text{m}$ 、比表面積は $2.05\text{ m}^2/\text{g}$ であった。この銅フレーク上に、実施例1と同様のプロセスで金を $6\text{ 重量部}$ 被覆して、メタリック顔料組成物を得た。

【0069】『比較例1』実施例1と同様のプロセスで製造したアルミニウムフレークを、粉末スパッタリング装置を用いたスパッタリング工程にかけず、そのままメタリック顔料組成物とした。

【0070】『比較例2』実施例1と同様のプロセスで製造したアルミニウムフレーク上に、実施例1と同様のプロセスで銀を $70\text{ 重量部}$ 被覆して、メタリック顔料組成物を得た。

【0071】『比較例3』実施例1と同様のプロセスで、出発原料として平均粒径 $30\text{ }\mu\text{m}$ のアトマイズアルミニウム粉末を使用し、粉碎時間を5時間としてアルミニウムフレークを得た。得られたアルミニウムフレークの平均粒径は $113\text{ }\mu\text{m}$ 、厚さは $1.44\text{ }\mu\text{m}$ 、比表面積は $1.82\text{ m}^2/\text{g}$ であった。このアルミニウムフレーク上に、実施例1と同様のプロセスで銀を $10\text{ 重量部}$ 被覆して、メタリック顔料組成物を得た。

【0072】『比較例4』実施例1と同様のプロセス

で、出発原料として平均粒径 $17\text{ }\mu\text{m}$ のアトマイズアルミニウム粉末を使用し、粉碎時間を0.5時間としてアルミニウムフレークを得た。得られたアルミニウムフレークの平均粒径は $20\text{ }\mu\text{m}$ 、厚さは $7.0\text{ }\mu\text{m}$ 、比表面積は $0.70\text{ m}^2/\text{g}$ であった。このアルミニウムフレーク上に、実施例1と同様のプロセスで銀を $10\text{ 重量部}$ 被覆して、メタリック顔料組成物を得た。

【0073】ここで、実施例1~4、比較例1~4において作製した、アルミニウムフレークの平均粒径と平均厚さ、メタリック顔料組成物の被覆金属の種類と量を、表1に示す。

【0074】また、実施例1~4、比較例1~4で作製したメタリック顔料の異種金属の薄膜の平均厚み： $d$  ( $\mu\text{m}$ ) は、BET法で求めた金属フレークの比表面積： $A$  ( $\text{m}^2/\text{g}$ ) 、異種金属の比重： $\rho$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) 、被覆重量： $w$  (%) を用いて、 $d = w / (100A\rho)$  の計算式を用いて求めた。結果を表1に示す。

【0075】**性能評価**  
『塗板の作成』実施例1~4、比較例1~4で作製したメタリック顔料（加熱残分99.8%以上） $6.5\text{ 重量部}$ を、シンナー（主成分：トルエン） $150\text{ 重量部}$ 中に均一に分散させた。得られた分散液に、アクリディックA-322（大日本インキ化学工業（株）製、アクリル系樹脂ワニス、固形分50重量%） $80\text{ 重量部}$ 、および、スーパーベッカミンL-117-60（大日本インキ化学工業（株）製、メラミン樹脂ワニス、固形分60重量%） $18.7\text{ 重量部}$ を配合し、ディスパーで $30\text{ 分間攪拌し、塗料を調製した。}$

【0076】前記の塗料をブリキ板上にエアスプレーにて塗装し、 $140^\circ\text{C}$ で $30\text{ 分間焼付けして膜厚約 }15\text{ }\mu\text{m}$ の塗膜を有する塗板を作成した。

【0077】『意匠性の評価』実施例1~4、比較例1~4で作製した塗膜の意匠性を下記の(i)~(iii)の試験に基づいて評価した。評価結果を表1に示す。

【0078】(i) 彩度の測定  
変角測色計（X-rite社製「X-rite MA-68」）によって塗膜を測色して、観測角 $15^\circ$ の時の塗膜の彩度を評価した。彩度が大きいほうが、着色度合いが大きい。

【0079】(ii) 輝度の測定  
変角測色計（X-rite社製「X-rite MA-68」）による入射角 $45^\circ$ 、正反射方向からのオフセット角 $15^\circ$ におけるL値によって塗膜の輝度を評価した。L値が大きいほうがメタリック感良好である。

【0080】(iii) 外観評価  
目視にて、塗膜外観の評価を行った。

【0081】  
【表1】

金属顔料組成物の組成と塗膜の評価結果

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
組成	金属フレーク	素材	Al	Al	Al	Cu	Al	Al	Al
		粒径(μm)	18	18	18	28	18	18	20
		厚さ(μm)	0.54	0.54	0.54	0.67	0.54	0.54	7.0
		比表面積(m²/g)	2.73	2.73	2.73	2.05	2.73	2.73	1.82
被覆金属	種類	Ag	Ag	Cu	Au	なし	Ag	Ag	Ag
	被覆量(重量部)	5	10	10	6	-	70	10	10
	膜厚(μm)	0.00174	0.00349	0.00410	0.00155	-	0.0244	0.00523	0.0136
評価結果 塗膜	彩度	9.35	7.55	10.24	9.06	3.34	0.21	2.04	0.88
	輝度	141	129	142	140	154	41	83	63
	外観	紫のメタリック調	緑のメタリック調	赤のメタリック調	赤紫のメタリック調	無彩色メタリック調	黒く荒れています	荒れています	荒れています

【0082】表1に示す結果より、実施例1～4の塗膜は、比較例1～4の塗膜に比べて、彩度および輝度が高く、金属感のある有彩系の特徴的な外観を示すことがわかる。

【0083】今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなく特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

#### 【0084】

【発明の効果】上記の実施例で明らかなように、本発明のメタリック顔料組成物を使用した塗膜は彩度が高く、金属感のある有彩系の特徴的な外観を示し、意匠性に優れている。

【0085】また、本発明のメタリック顔料組成物を用いることにより、多様な色彩をもち、同時に優れた光輝性を示す、従来にない特徴的な意匠性を有する、塗料組

成物、インキ組成物、樹脂組成物、ゴム組成物、塗膜、などの各種製品を提供することができ、多様化する消費者の要望に今まで以上に応えることができるようになる。

【0086】さらに、本発明のメタリック顔料組成物の製造方法は、効率的であり、得られる製品の品質の面でも優れている。

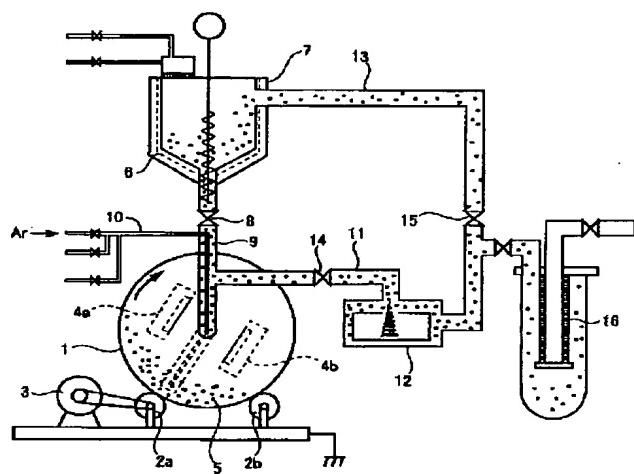
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の金属顔料組成物の製造に好適に使用可能なスパッタリング装置の1側面を示す概念図である。

#### 【符号の説明】

1 回転ドラム、2a, 2b ロール、3 モーター、4a, 4b スパッタリング源、5 金属フレーク、6 加熱コイル、7 減圧処理室、8 バルブ、9 供給管、10 Arガス導入管、11 分岐管、12 流体ジェットミル、13 循環管、14, 15 バルブ、16 固気分離装置。

【図1】



## フロントページの続き

(51) Int.CI.<sup>7</sup>  
C 0 9 D 7/12  
11/00  
201/00

## 識別記号

F I  
C 0 9 D 7/12  
11/00  
201/00

## マークコード(参考)

(72)発明者 星谷 隆嗣  
大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8  
号 東洋アルミニウム株式会社内  
(72)発明者 杉田 修一  
千葉県市川市高谷新町7番1号 日新製鋼  
株式会社技術研究所内  
(72)発明者 白井 安  
千葉県市川市高谷新町7番1号 日新製鋼  
株式会社技術研究所内

F ターム(参考) 4J002 BD121 BG001 CD001 CF001  
CK021 DA076 DA116 FB076  
FD096  
4J037 AA04 AA05 CA03 CB04 CB09  
CB23 DD05 DD10 EE03 EE23  
EE44 FF09  
4J038 CD091 CG001 DA112 DB001  
DD001 DG001 DG102 DG262  
DL001 HA066 JA01 JA07  
JA16 JA32 JA55 KA03 KA06  
KA08 KA20 MA09 MA14 NA01  
PB07 PC02 PC08  
4J039 AD04 AD09 AE03 AE04 AE05  
AE06 AE11 BA06 BC01 BC05  
BC07 BC09 BC16 BC20 BD04  
BE01 BE12 BE25 CA02 EA33  
FA01 FA02